

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-29576

(43) 公開日 平成7年(1995)1月31日

(51) Int.Cl.⁶

H 0 1 M 4/88

識別記号

庁内整理番号

K

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 4 F D (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平5-197729

(22) 出願日 平成5年(1993)7月16日

(71) 出願人 591261509

株式会社エクス・リサーチ

東京都千代田区外神田2丁目19番12号

(71) 出願人 000100768

アイシン・エイ・ダブリュ株式会社

愛知県安城市藤井町高根10番地

(72) 発明者 清水 純子

東京都千代田区外神田2丁目19番12号 株

式会社エクス・リサーチ内

(72) 発明者 山本 泰三

東京都千代田区外神田2丁目19番12号 株

式会社エクス・リサーチ内

(74) 代理人 弁理士 ▲桑▼原 史生

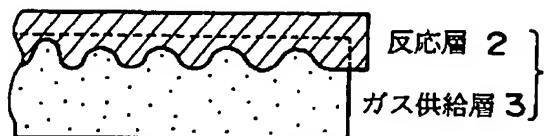
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用電極の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 反応層とガス供給層とからなる電極において、それらの接合状態を従来の整然と二分された状態から互いに投錨的に浸透された状態とし、反応層における触媒にガス供給層を通してまんべんなくガスを供給し、電池性能を向上させる。

【構成】 触媒とイオン導電性ポリマー溶液と水とを混合してペーストを調整する。このペーストを、所定の反応ペースト塗布用の枠内に固定された多孔質シート上に塗布するに際し、該多孔質シートの背面側から吸引しつつ該塗布を行う。これによりペーストが多孔質シートに浸透した状態が得られ、その後ペーストを乾燥固化することにより、ペーストよりなる反応層2と多孔質シートよりなるガス供給層3とが投錨的に接合されてなる電極1が製造される。



(2)

特開平7-29576

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 触媒と溶剤と水を少なくとも含んで調製されたペーストよりなる反応層をガス供給層上に形成するに際して、前記ガス供給層の背面側より吸引しながら形成することにより前記ペーストを前記ガス供給層に浸透せしめることを特徴とする、燃料電池用電極の製造方法。

【請求項2】 燃料電池の電解質を構成すると同一のイオン導電性ポリマーの溶液を結着剤として前記ペーストを調製し、前記乾燥工程において前記イオン導電性ポリマー溶液中のアルコール溶剤分を乾燥除去することを特徴とする請求項1の燃料電池用電極の製造方法。

【請求項3】 前記乾燥工程を室温にて行うことを特徴とする請求項2の燃料電池用電極の製造方法。

【請求項4】 前記ペーストによる反応層を形成する前に前記ペーストを加熱乾燥することにより前記ペースト中のアルコール溶剤分のみを任意量除去してその粘度を調整することを特徴とする請求項2または3の燃料電池用電極の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は燃料電池用電極の製造方法に関し、特に塗布法による燃料電池用電極の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池において、触媒を含む反応層の外側に、カーボンシート等の多孔質体よりなるガス供給層を設けることにより、ガス（水素または酸素）を均等に拡散しながら反応層に供給して電池反応の効率化を図ることが行われている。

【0003】ガス供給層に反応層を接合させる方法としては、一般に両側より圧接する方法が採用されているが、圧接による場合は接合面を均一に加圧することが困難であった。また、圧接の際の高圧によって反応層中のガス導入路が破壊され、反応層へのガス供給を妨げてしまうという欠点もあった。

【0004】これらの欠点を解消すべく、特開平4-329264号公報には、反応層を形成する混合成分をアルコールでペースト状にしたものをガス供給層上に塗布し、高温にて焼成することにより接合する方法が提案されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】ところが、圧接法あるいは焼成法のいずれによって接合しても、反応層とガス供給層とがほぼ整然と二分されてしまう（図4）ため、反応層中のすべての触媒に均等にガスを供給することが困難である。すなわち、ガス供給層から離れた位置にある触媒の活性が低下してしまう。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、反応層とガス

2

供給層とからなる電極を得るに当たってこれら層同士の接合状態を良好にし、ガス供給層を介して行われるガスの供給を反応層中のほぼすべての触媒に対して満遍なく行われるようにし、反応層における触媒の活性の偏りを解消することを目的とする。

【0007】この目的を達成するため、本発明は塗布法による燃料電池用電極の製造方法を採用する。燃料電池またはそのための電極の製造を塗布法によって行うことは従来より提案されている。たとえば特開平5-29005号公報には、イオン導電性ポリマー等よりなる電解質板上に電極触媒用のペーストをスクリーン印刷により塗布して電極-電解質接合体を製造することが記載されている。しかしながら、ガス供給層に反応層を接合する際に単に塗布法を適用しただけでは、上記したと同様にこれらの層が整然と二分された構造体となり、課題を解決することができない。

【0008】そこで、本発明は、ガス供給層に反応層を接合するための手法として塗布法を採用しつつ、塗布の際に接合面とは反対側から吸引することにより反応層ペーストをガス供給層に浸透させた状態とすることを想起し、完成に至ったものである。

【0009】すなわち本発明による燃料電池用電極の製造方法は、触媒と溶剤と水を少なくとも含んで調製されたペーストよりなる反応層をガス供給層上に形成するに際して、ガス供給層の背面側より吸引しながら形成することによりペーストをガス供給層に浸透せしめることを特徴とする。

【0010】ペーストのガス供給層への浸透深さは、ガス供給層の細孔径および吸引の強さを調節することによってコントロールされる。

【0011】塗布用のペーストは、燃料電池の電解質を構成すると同一のイオン導電性ポリマーの溶液を結着剤として調製され得る。このイオン導電性ポリマー溶液中のアルコール溶剤分は、塗布後の乾燥工程により除去することができる。

【0012】好ましくは、ペーストを塗布する前に該ペーストを加熱乾燥することによりペースト中のアルコール溶剤分のみを任意量除去し、該ペーストを塗布に適した粘度に調整する。

【0013】

【作用】反応層を形成すべきペーストをガス供給層を形成すべき多孔質シート上に塗布するに際して、多孔質シートの塗布面とは反対側から吸引しながら該塗布が行われるので、ペーストが多孔質シートに少なくとも部分的に浸透した状態が得られる。

【0014】

【実施例】触媒（Pt）を担持するカーボンブラック、イオン導電性ポリマー（ナフィオン登録商標）溶液および水を1:13.3:4.0の割合で混合し、15分間超音波攪拌した後、65℃の加熱条件に1時間保持し

(3)

特開平7-29576

3

て粘度調整して、塗布用ペーストを調製する。

【0015】この塗布用ペーストを、塗布用の枠内に固定した撥水处理済みのシート状多孔質体（カーボンシート、金属発泡体等）上に塗布するが、その際、多孔質シートの背面側より吸引しつつ塗布を行う。これにより、塗布されるペーストが多孔質シート内に十分に浸透される。ペーストの多孔質体への浸透深さは、多孔質体の細孔径および吸引の強さを調節することによりコントロールする。

【0016】吸引しつつ塗布を終了した後、室温にて約1時間乾燥して、ナフィオン溶液中のアルコール溶剤を乾燥除去し、印刷用ペーストによる反応層を多孔質シートからなるガス供給層の上に積層形成する。上記のように塗布用ペーストは多孔質シート内に浸透された状態で乾燥固化されるので、このようにして得られる電極1においては、反応層2が部分的にガス供給層3に入り込んだ接合状態が得られる（図1）。この接合状態より明らかのように、反応層2中の触媒担持量を減少させることなくその実質的な厚みを薄くすることができ、コンパクト化が図られる。また、反応層2はガス供給層3と交絡した構造となるため、これらの接合表面積が平面同士の接合に比べて増大し、電極の抵抗値が低減される。

【0017】以上のようにして同一構成の電極を2個作成し、電解質となるイオン導電性ポリマー（ナフィオン）4をこれら電極1、1で挟み、ホットプレス（100kg/cm²、130℃、90秒）により接合して、電極-電解質-電極よりなる単電池5が製造される（図2）。

【0018】図3は、本発明および従来技術による単電池における電池電圧（V）-電流密度（A/cm²）カーブの比較図である。この比較図より、電極における反応層とガス供給層との接合をホットプレスにより行った従来技術の単電池に比べて、本発明による単電池の電極の電流密度は大幅に向上していることが分かる。

【0019】塗布用ペーストにおいては触媒の結着剤として、電解質に用いられるイオン導電性ポリマーと同一組成物であるナフィオンの溶液が用いられる。このことは、本発明の電極を用いて製造される燃料電池においてはイオン導電性ポリマーが電解質のみならずその両側に接する電極においても存在することによって電池性能を向上させると共に、塗布用ペーストの乾燥工程を簡素化することを可能にする。

【0020】すなわち、本発明の塗布用ペーストには樹脂の溶剤として低沸点かつ高揮発性の溶剤（主としてアルコール）が用いられ、従来塗布用ペーストの粘度調整のために常用されてきたエチレングリコールやグリセリン等の溶剤を含まない。

【0021】調製した塗布用ペーストはたとえば65℃、1時間の条件にて乾燥処理され、これによりイオン導電性ポリマーの樹脂溶液中のアルコールの一部が乾燥

4

除去されて該ペーストが所定の粘度とされる。この際の乾燥処理条件を変えることによりペーストの粘度を自在に調整し、塗布に適したペースト粘度（たとえば5～2,000ポイズ）とすることができる。

【0022】このようにして粘度調整されたペーストを多孔質シート上にアスピレーター、ロータリーポンプ等の減圧手段により吸引しつつ塗布した後に行われる乾燥処理は、得られた電極を1時間程度室温に放置することにより行うことができ、このような室温乾燥によってイオン導電性ポリマー溶液中に残留するアルコールを完全に除去することができる。したがって、塗布用ペースト中の溶剤分が電極中に残留することによる電極性能の低下の問題は本発明では生じない。

【0023】電解質に用いられるイオン導電性ポリマーは一般に熱に弱く、その分解温度は150℃近辺であるものの、実際には130℃付近の加熱乾燥によっても熱劣化してイオン導電性が悪化する。しかしながら本発明においては、ペースト粘度調整のための乾燥処理温度は65℃程度で十分であり、また電極を得た後のペースト固化は室温放置で行うことが可能であるため、イオン導電性ポリマーを熱劣化させることがなく、所期の電池性能が損なわれることがない。

【0024】

【発明の効果】本発明によれば、ガス供給層を介してガスが反応層中の触媒にまんべんなく供給され、触媒の活性化が図られるため、燃料極および空気極のいずれにおいても電極の性能が大幅に向上する。

【0025】一方、反応層の厚みが薄くなるため、反応ペーストに撥水剤を添加する必要がなくなり、電極性能が向上する。

【0026】また、本発明は塗布法により電極を製造するものであるが、塗布用ペーストに結着剤として、電解質に用いられると同一のイオン導電性ポリマーを用いるため、電池全体のイオン導電性が向上され、またエチレングリコールやグリセリン等の溶剤を含まないため、これら溶剤が電極中に残留することによる電極性能の低下を招くことがない。

【0027】更に、これら溶剤および撥水剤を含まないペーストを使用しているため、ペースト塗布後の乾燥が室温で可能となり、イオン導電性ポリマーに対する熱劣化が回避される。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明により製造される電極における反応層とガス供給層との接合状態を示す模式図である。

【図2】図1の電極を用いて製造される単電池を示す模式図である。

【図3】図2の単電池の性能を従来例と比較して示す図である。

【図4】従来例による電極における反応層とガス供給層との接合状態を示す模式図である。

(4)

特開平7-29576

5

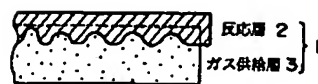
6

【符号の説明】

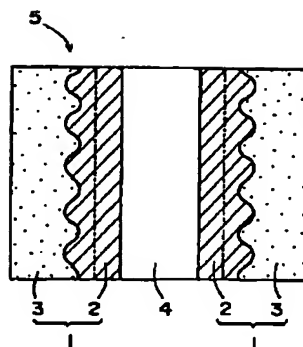
- 1 電極
2 反応層

- 3 ガス供給層
4 イオン導電性ポリマー
5 単電池

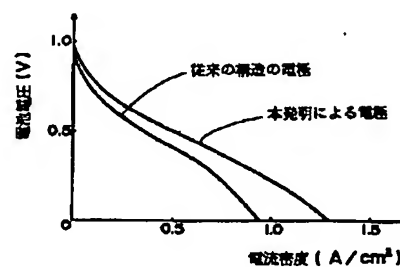
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

(72)発明者 小関 宏彦
愛知県安城市藤井町高根10番地 アイシ
ン・エイ・ダブリュ株式会社内

(72)発明者 上野 正隆
愛知県安城市藤井町高根10番地 アイシ
ン・エイ・ダブリュ株式会社内